ミー・プラズモンのランダウ減衰(原子核とマイクロクラスターの類似性と異質性)

倉沢, 治樹; 鈴木, 敏男

ミー・プラズモンのランダウ減衰

倉沢　治樹
２６３　千葉市稲毛区弥生町１－３３千葉大学理学部物理学科

鈴木　敏男
９１０福井市文京３－９－１福井大学工学部応用物理学科
３５１－０１埼玉県和光市広沢２－１理化学研究所サイクロトロン研究室

マイクロクラスターにおける電子群とイオンとの間の双極子振動状態は Mie Plasmon と呼ばれ、古くから知られているが、特にその Lanndau Damping Width、Γ を定性的に理解しようとする試みは驚くほど多くの人々によってなされている [1, 2, 3]。それらの研究の殆どは川端一久保理論 [4] に基づくもので、結果は

$$\Gamma = A\frac{v_F}{R} \tag{1}$$

である。ここで、A はそれぞれの仮定に依る定数、v_F は電子のフェルミ速度、R はクラスターの半径である。上式が実験を再現するかどうかは未だ明確ではないが [2], 上式と同じ R-依存性を示すデータも報告されている [5]。また、詳細な RPA 計算は上の傾向を示している [5]。

さて、eq.(1) を導く全ての模型に共通する本質的な仮定は

1. 電子を無限の深さをもつポテンシャルに閉じ込める、
2. Landau Damping の原因となる Mie Plasmon と他の内部状態との結合ハミルトニアンをそのポテンシャルの微分で与える、

ことである。この考えのもとになっているものは恐らく、電子とイオンとの引力が電子と電子の斥力によって遮蔽されるため電子は一様な引力を感じ、双極子振動をしている電子がエネルギーを失うのはクラスターの表面に於いてだけであるという半古典的なイメージに基づくものであろう。

我々は上述のような仮定をしないで Landau Damping Width を定性的に理解することを試みる。それは集団運動に関する朝永理論 [6] が可能にする。朝永理論では

$$[\xi, \pi] = i \tag{2}$$

を満足する集団運動を記述するための canonical variables ξ, π で、ハミルトニアンを展開する。二次まで書けば

$$H = H_0 + H_1^\xi \xi + H_1^\pi \pi + \frac{1}{2}\left(H_2^\xi \xi^2 + H_2^\pi \pi^2\right) + \frac{1}{2}\left(H_2^{\xi\pi}\xi\pi + H_2^{\pi\xi}\pi\xi\right) \tag{3}$$

である。係数 H_i は定義により ξ, π を含まないから、次のように、H, ξ, π の交換関係で与えられる、

$$H_1^\xi = i[\pi, H] + \xi[\pi, [\pi, H]] - \pi[\xi, [\pi, H]], \tag{4}$$

$$H_1^\pi = -i[\xi, H] + \pi[\xi, [\xi, H]] - \xi[\pi, [\xi, H]], \tag{5}$$

$$H_2^\xi = -[\pi, [\pi, H]], \tag{6}$$

$$H_2^\pi = -[\xi, [\xi, H]], \tag{7}$$

$$H_2^{\xi\pi} + H_2^{\pi\xi} = 2[\xi, [\pi, H]]. \tag{8}$$

もし、

$$H_1^{\xi} = H_1^{\pi} = H_2^{\xi\pi} = H_2^{\pi\xi} = 0, \quad H_2^{\xi} = \text{const.}, \quad H_2^{\pi} = \text{const.}, \tag{9}$$

であるならば、ξ, π で記述される集団運動状態は他の状態と結合することはなく、幅のない調和振動状態となる。しかし、一般的には H_i は他の自由度に依存するから、その集団運動状態は他の状態と結合し減衰することになる。H_2^{ξ}, H_2^{π} が定数でないとき、集団運動状態のエネルギー ω はそれらの基底状態での期待値をとって決める、

$$\langle 0|H_2^{\xi}|0\rangle = B\omega^2, \qquad \langle 0|H_2^{\pi}|0\rangle = B^{-1}. \tag{10}$$

N_i 個の Z-価のイオンと N_e 個の電子 ($N_e = ZN_i$) からなるクラスターを考える。このとき、双極子運動を記述する集団座標は

$$\xi = \frac{1}{\sqrt{N_e}}\sum_{i=1}^{N_e} z_i, \qquad \pi = \frac{1}{\sqrt{N_e}}\sum_{i=1}^{N_e} p_{zi} \tag{11}$$

と書くことが出来る。これは朝永理論の要求する関係 eq.(1) を満足する。

クラスターのハミルトニアンは

$$H = \sum_{i=1}^{N_e}\frac{\boldsymbol{p}_i^2}{2m} - \sum_{i=1}^{N_e}\sum_{\alpha=1}^{N_i}\frac{Ze^2}{|\boldsymbol{r}_i - \boldsymbol{R}_\alpha|} + \frac{1}{2}\sum_{i,j}^{N_e}\frac{e^2}{|\boldsymbol{r}_i - \boldsymbol{r}_j|} + H(\text{ions}) \tag{12}$$

である。ここで、イオンに対するハミルトニアン $H(\text{ions})$ は我々には関係がない。また、電子間のポテンシャルは ξ, π と交換するから集団座標を含んでいない。このことから、まず

$$[\xi, [\pi, H]] = 0, \qquad [\xi, [\xi, H]] = -\frac{1}{m}, \qquad H_1^{\pi} = 0 \tag{13}$$

が求まり、上のハミルトニアンを

$$H = H_0 + H_1^{\xi}\xi + \frac{1}{2m}\pi^2 + \frac{1}{2}\langle 0|H_2^{\xi}|0\rangle\xi^2 \tag{14}$$

と書くことが出来る。双極子運動は上の第２項によって減衰することになる。

マイクロクラスターはイオンに一様な分布を仮定する jellium model [2] によって良く理解されている、

$$\rho_i(r) = \frac{3N_i}{4\pi R^3}\theta(R - r). \tag{15}$$

ここで、R はその半径である。従って、ハミルトニアン eq.(12) の第２項は

$$V = \sum_{i=1}^{N_e} V(\boldsymbol{r}_i), \tag{16}$$

$$V(r) = -\frac{N_e e^2}{2R}\left(3 - \frac{r^2}{R^2}\right)\theta(R - r) - \frac{N_e e^2}{r}\theta(r - R) \tag{17}$$

で置き換えられる。このとき、交換関係は

$$[\pi, H] = -i\frac{N_e e^2}{R^3}\frac{1}{\sqrt{N_e}}\sum_{i=1}^{N_e} z_i\,\theta(R - r_i) - iN_e e^2\frac{1}{\sqrt{N_e}}\sum_{i=1}^{N_e}\frac{z_i}{r_i^3}\theta(r_i - R), \tag{18}$$

$$[\pi, [\pi, H]] = -\frac{e^2}{R^3}\sum_{i=1}^{N_e}\theta(R - r_i) - e^2\sum_{i=1}^{N_e}\frac{x_i^2 + y_i^2 - 2z_i^2}{r_i^5}\theta(r_i - R) \tag{19}$$

となる。従って、最後の式から

$$\langle 0|[\pi,[\pi,H]]|0\rangle = -\frac{e^2}{R^3}N_{\text{eff}}, \tag{20}$$

$$N_{\text{eff}} = 4\pi\int_0^R \rho_e(r)r^2\,dr \le N_e, \tag{21}$$

が求まる。ここで電子の密度分布 $\rho_e(r)$ は球形とした。この式と eqs.(10), (13) から、結局 Mie plasmon の振動数として、

$$\omega = \sqrt{\frac{e^2 N_{\text{eff}}}{mR^3}} \tag{22}$$

が得られる。この状態が光励起強度に対する和則値（TRK sum rule）を尽くす集団運動状態であることは容易に示せる [7]。また、電子の密度分布がイオンの分布からはみ出していなければ、上式は古典電磁気学で知られている Mie 振動数に一致する [1, 2]、

$$\omega_{\text{M}} = \sqrt{\frac{e^2 N_e}{mR^3}}. \tag{23}$$

このように量子効果が少し Mie 振動数を減少させる [1, 2]。

Mie plasmon の Landau damping を与える結合ハミルトニアンはeqs.(4), (18), (19) で与えられる、

$$H_1^\xi = \frac{N_e e^2}{R^3}\frac{1}{\sqrt{N_e}}\sum_{i=1}^{N_e} z_i\theta(R-r_i) + N_e e^2\frac{1}{\sqrt{N_e}}\sum_{i=1}^{N_e}\frac{z_i}{r_i^3}\theta(r_i-R) - m\omega^2\xi. \tag{24}$$

上式は

$$H_1^\xi = \left(\frac{N_e e^2}{R^3} - m\omega^2\right)\xi + N_e e^2\frac{1}{\sqrt{N_e}}\sum_{i=1}^{N_e} z_i\left(\frac{1}{r_i^3} - \frac{1}{R^3}\right)\theta(r_i-R) \tag{25}$$

と書き直すと分かり易い。前にも述べたように、電子間相互作用は集団運動座標を含まないので、結合ハミルトニアンには寄与しない。

我々は eq.(25) による減衰幅を二乗偏差を使って議論する [1, 7]、

$$\sigma = \sum_m |\langle m|H_1^\xi\xi|\omega\rangle|^2 = \frac{1}{2m\omega}\sum_m |\langle m|H_1^\xi|0\rangle|^2. \tag{26}$$

ここで $|m\rangle$ は集団運動状態 $|\omega\rangle$ に直交する状態である。Eq.(26) の最後の式では、状態 $|m\rangle$ の中に集団運動状態と結合している状態は含まれていないとした。ところで、 H_1^ξ は集団運動状態 $|\omega\rangle$ を励起出来ないから、 $|m\rangle$ についての和を $|\omega\rangle$ を含む $|n\rangle$ についての和に置き換えられる。すると、eq.(25) から、

$$\sigma = \frac{N_e e^4}{2m\omega}\sum_n \left|\langle n|\sum_{i=1}^{N_e} z_i\left(\frac{1}{r_i^3} - \frac{1}{R^3}\right)\theta(r_i-R)|0\rangle\right|^2 - \frac{\omega^2}{4}\left(\frac{N_e - N_{\text{eff}}}{N_{\text{eff}}}\right)^2 \tag{27}$$

が得られる。上式は今までの Landau damping の理解と全く違う結果を与えている。即ち、幅の原因は電子密度がイオン分布からはみ出すことによる量子効果である。はみ出しがなければ減衰は起きず、$\sigma = 0$ である。実はこれは当然で、$r < R$, では eq.(17) は調和振動子のポテンシャルに他ならないからである。

以上のように、我々は朝永理論を使えば、先に述べた二つの仮定をせずに Mie plasmon の Landau damping を議論することが出来る。結果は仮定 1 と異なり、幅は電子密度のイオン密度表面からのしみだしによるものである。更に、connsistent に求めた Mie plasmon と他の状態との結合ハミルトニアンは仮定 2 と全く異なる。現在、eq.(27) を具体的に計算し、詳細な RPA 計算 [5] との比較を行なっているが、上述の結果は RPA の計算結果を非常に良く説明する [8]。

References

[1] G. F. Bertsch and R. A. Broglia, Oscillations in Finite Quantum System (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1994).

[2] M. Brack, Rev. Mod. Phys. **65** (1993) 677, references therein.

[3] C. Yannouleas and R.A. Broglia, Ann. Phys. **217** (1992) 105, references therein.

[4] A. Kawabata and R. Kubo, J. Phys. Soc. Japan **21** (1966) 1765.

[5] C. Yannouleas, E. Vigezzi and R.A. Broglia, Phys. Rev. **B47** (1993) 9849.

[6] S.I. Tomonaga, Prog.Theor. Phys. **13** (1955) 467, 482;
T. Suzuki, J. de Phys. **45** (1984) C4-251.

[7] H. Kurasawa and T. Suzuki, Nucl. Phys. **A597** (1996) 374.

[8] H. Kurasawa, K. Yabana and T. Suzuki, to be published.